蒲州大学

毕业论文

(本科生)

论文题目(中文) <u>快中子诱发 ²³⁸U 独立裂变截面测量</u> Measurement Of Cross-sections For

²³⁸U Independent Fission Channel

 论文题目(外文)
 Induced By Fast Neutron

 学生姓名
 李生

导师姓名、职称 ______方开洪、副教授_____

学生所属学院 _____ 核科学与技术学院 _____

 专业
 核工程与核技术

 年
 级
 ______2016 级

兰州大学教务处

诚信责任书

本人郑重声明:本人所呈交的毕业论文(设计),是在导师的指导下独立进 行研究所取得的成果。毕业论文(设计)中凡引用他人已经发表或未发表的成 果、数据、观点等,均已明确注明出处。除文中已经注明引用的内容外,不包 含任何其他个人、集体已经发表或未发表的论文。

本声明的法律责任由本人承担。

论文作者签名: <u>李</u>上____日期: _≥020.06.11___

关于毕业论文(设计)使用授权的声明

本人在导师指导下所完成的论文及相关的职务作品,知识产权归属兰州大 学。本人完全了解兰州大学有关保存、使用毕业论文(设计)的规定,同意学校 保存或向国家有关部门或机构送交论文的纸质版和电子版,允许论文被查阅和借 阅;本人授权兰州大学可以将本毕业论文(设计)的全部或部分内容编入有关数 据库进行检索,可以采用任何复制手段保存和汇编本毕业论文(设计)。本人离 校后发表、使用毕业论文(设计)或与该毕业论文(设计)直接相关的学术论文 或成果时,第一署名单位仍然为兰州大学。

本毕业论文(设计)研究内容:

应可以公开

口不宜公开,已在学位办公室办理保密申请,解密后适用本授权书。

(请在以上选项内选择其中一项打"√")

论文作者签名: _ _ _ _ _

日期: _________1

导师签名:一万云、 日期: _2020.06.11

快中子诱发²³⁸U 独立裂变道截面测量

摘要

快中子反应堆为了提高铀资源的利用率,利用²³⁹Pu发生裂变反应释放的快中 子与堆芯外围再生区的²³⁸U作用再生成燃料²³⁹Pu。在该过程中还涉及到²³⁸U在 快中子作用下发生的独立裂变过程,所以快中子反应堆的堆芯设计需要准确的 ²³⁸U的裂变数据。然而传统的快中子诱发²³⁸U独立裂变道截面数据并不精细,因此 快中子诱发²³⁸U独立裂变道截面的测量具有较高的研究价值,同时也能应用在核 能利用、基础核数据测量、裂变数据库的补充和优化、核安全和核废料处理方面 等领域。

本工作利用氘氚反应产生的 14MeV能区中子对 ²³⁸U样品开展中子辐照,利用 辐照过程伴随α粒子对中子注量率进行监测。样品经过辐照和冷却之后,使用低本 底高纯锗探测器对活化产物的特征伽马射线进行跟踪测量,甄别相应核素,从而推 算出快中子诱发 ²³⁸U独立裂变的反应截面。在实际测量中,由于存在竞争反应会 导致辐照过程出现中子通量波动,因此选择纯度为 99.9%的Al片作为监督片来消 除较难测量练的中子注量率并进行中子注量率波动修正。由于样品具有一定形状 和厚度,导致特征伽马射线穿透物质会损失部分能量,从而进行自吸收修正。几何 修正应用在探测效率进行测量时用点源近似样品几何形状假设。伽马射线的级联 符合会导致探测器全能峰计数与真实情况不符,需要进行相应的级联符合修正。

本文选取了裂变核素¹⁰¹Tc和¹³¹Te进行裂变截面数据的计算,并得到了以下结 论,当中子能量为14.1±0.3MeV、14.5±0.3MeV和14.7±0.3MeV时,衰变子核¹⁰¹Tc 的裂变截面在相应能量下分别为58.72±3.33mb、66.88±3.86mb和75.91±4.44mb, 衰变子核¹³¹Te的裂变截面在相应能量分别为43.92±2.58mb、48.23±2.87mb和 46.96±2.85mb。

关键词: D-T 中子; ¹⁰¹Tc; ¹³¹Te; ²³⁸U; 独立裂变截面; 中子活化

I

MEASUREMENT OF CROSS-SECTIONS FOR ²³⁸U INDEPENDENT FISSION CHANNEL INDUCED BY FAST NEUTRON

Abstract

In order to improve the utilization rate of uranium resources, the fast neutron reactor uses the fast neutron released by the fission reaction of ²³⁹Pu and the ²³⁸U in the peripheral regeneration zone of the core to regenerate fuel ²³⁹Pu. In this process, the independent fission process of ²³⁸U under the action of fast neutrons is also involved, so the core design of the fast neutron reactor needs accurate ²³⁸U fission data. However, the traditional fast neutron-induced ²³⁸U independent fission channel cross-section data is not precise, so the measurement of the fast neutron-induced ²³⁸U independent fission channel cross-section has high research value, and can also be used in nuclear energy utilization, basic nuclear data measurement, fission Replenishment and optimization of databases, nuclear safety and nuclear waste disposal.

In this work, neutron irradiation was performed on the ²³⁸U sample using the 14MeV neutrons produced by the deuterium-tritium reaction, and the neutron fluence rate was monitored with the alpha particles during the irradiation process. After the sample was irradiated and cooled, a low-background high-purity germanium detector was used to track and measure the characteristic gamma rays of the activation product, and the corresponding nuclide was screened, so as to calculate the reaction cross section of the fast neutron induced ²³⁸U independent fission. In the actual measurement, due to the existence of a competitive reaction that will cause fluctuations in the neutron flux during the irradiation process, the Al sheet with a purity of 99.9% was selected as the supervisory sheet to eliminate the neutron fluence rate that is difficult to measure and practice and perform neutron injection Volume rate fluctuation correction. Since the sample has a certain shape and thickness, the characteristic gamma rays penetrating the substance will lose part of the energy, so that the self-absorption correction is performed. Geometry correction is used to approximate the sample geometry assumption with a point source when measuring the detection efficiency. The cascading compliance of gamma rays will cause the detector's omnipotent peak count to be inconsistent with the real situation, and the corresponding cascading compliance correction is required.

In this paper, fission nuclide ¹⁰¹Tc and ¹³¹Te are selected for the calculation of fission cross-section data, and the following conclusions are obtained. When the neutron energy is 14.1 ± 0.3 MeV, 14.5 ± 0.3 MeV and 14.7 ± 0.3 MeV, the fission cross-section of the decay sub-nucleus ¹⁰¹Tc is The corresponding energies are 58.72 ± 3.33 mb, 66.88 ± 3.86 mb and 75.91 ± 4.44 mb respectively, and the fission cross sections of the decay nucleus ¹³¹Te at the corresponding energies are 43.92 ± 2.58 mb, 48.23 ± 2.87 mb and 46.96 ± 2.85 mb, respectively.

Key words: D-T neutron; ¹⁰¹Tc; ¹³¹Te; ²³⁸U; Independent Fission Channel Cross-sections; neutron activation

目 录

摘 要	I
Abstract	II
第一音 绪论	
11研究背景	1
1.2 本论文工作	2
第一音 基本百 	3
7 年 至午你在 9 1 中子与物质相互作田	
2.1 1 相互作田米刑概试	
2.1.1 相互作用关至视远	3
2.1.2 { (人) 2.1.2 { (人) 	Э Д
2.2 似农文区生化汉伯八佩心	
2.3 <u>只</u> ~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~	
2.3.1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1	
2.3.2 1 1 11 四公园重庆区截面11 11 八修工	
第二章 实验仪器及实验过程	
3.1 实验仪器	
3.1.1 中子源	
3.1.2 伽马能谱测量装置	
3.2 实验过程	14
3.2.1 样品制备	14
3.2.2 样品的辐照和冷却	
3.2.3 活化产物伽马能谱的测量	16
第四章 实验结果及数据处理	
4.1 实验结果	
4.1.1 中子注量率监测	
4.1.2 标准源 ¹³⁷ Cs、 ⁶⁰ Co 和 ¹⁵² Eu 的伽马能谱	
4.1.3 监督片活化能谱测量结果	
4.1.4 样品活化能谱测量结果	
4.2 探测效率刻度及修正因子的计算	

4.2.1 效率刻度曲线	23
4.2.2 待测核素相关参数	25
4.2.3 中子注量率修正因子 K 的计算	
4.2.4 自吸收修正因子 F _s 的计算	
4.2.5 几何修正因子的计算	
4.3 待测核素反应截面的计算	
4.3.1 对 ¹⁰¹ Tc 裂变截面的计算	
4.3.2 对 ¹³¹ Te 裂变截面的计算	
4.4 实验结论	
第五章 总结和展望	
参考文献	
致谢	
论文(设计)成绩	

第一章 绪论

1.1 研究背景

二十世纪三十年代,物理学家们通过一系列实验发现,利用质子或者中子轰击 靶原子偶尔会生成放射性核素。1939年,德国科学家奥托•哈恩发现利用中子对 铀进行轰击会发生剧烈的反应,铀核分裂成一些原子序数更小的核并释放出大量 的能量。自此,铀核裂变被发现,这一现象指出在中子的作用下,一些重核可以裂变 成更轻的核,并伴随这一过程释放巨大的能量^[1]。

经过大半个世纪的发展,目前世界上大多数商用核反应堆仍为热中子反应堆, 使用易裂变核²³⁵U作为燃料。地壳中铀的含量仅为百万分之二,且大多为贫矿,具 有开采价值的铀矿含量非常少。此外,在这些铀矿中,可裂变核²³⁸U的丰度占到了 99.275%,作为热中子反应堆燃料的易裂变核²³⁵U的丰度仅为0.72%,热中子反应 堆对铀矿中储存的能量的利用率只有1-2%。不仅如此,热中子反应堆产生的一些 放射性核素半衰期长,为乏燃料的后处理工作带来许多困难。

快中子增殖堆能够提高铀矿资源利用率并将乏燃料中长寿命放射性核素嬗 变转化为短寿命核素。快中子增殖堆使用压水堆生产的²³⁹Pu 作为堆芯易裂变燃 料,堆芯外围再生区放置²³⁸U 吸收²³⁹Pu 裂变生成的快中子再增殖²³⁹Pu,通过铀-钚(U-Pu)循环能够将铀的利用率提升到 50%~70%^[2]。同时通过快中子增殖堆能将 乏燃料中的长半衰期放射性核素嬗变为短寿命核素,减小放射性废物的运输和储 存难度,并解决热中子反应堆产生的²³⁸U 堆积问题。²³⁸U 作为快中子反应堆和乏 燃料中重要的一部分,精确测量²³⁸U 的核裂变数据对快中子反应堆的设计,乏燃料 的后处置问题能够起到积极的促进作用。

ADS 是上世纪末提出来的概念,它的全称为加速器驱动次临界洁净核能系统, 原理是通过加速器对质子进行加速,利用高能质子与重金属靶发生散裂反应产生 能谱分布较宽的大量中子来驱动次临界包层系统并维持裂变反应释放能量、增殖 易裂变核材料并嬗变长寿命放射性核素。

ADS 能够将可裂变核 ²³⁸U 或者 ²³²Th 分别转变为易裂变核 ²³⁹Pu 和 ²³³U,提高 铀、钍资源的利用率,并通过分离嬗变乏燃料以缩短乏燃料中放射性核素的寿命, 随着加速器技术的发展和建设成本的进一步缩小,ADS 应用前景非常广阔,²³⁸U 作 为可裂变核增殖材料和乏燃料中的主要成分,测量精确的 ²³⁸U 核数据对 ADS 的设

计和建造过程具有重要意义。

目前,世界上主要核数据库 ENDF/B-VIII.0、CENDL-3.1、BROND-3.1、 JENDL-4.0、JEFF-3.3 均提供了 14MeV 能区中子下 ²³⁸U 的裂变截面数据,但各评 价数据库间的数据存在一定差异,在某些实验点各评价数据库间的数据存在离散, 在 14MeV 能区中子诱发 ²³⁸U 裂变产物链产额实验数据对比中,不同实验点相同相 对原子质量的裂变产物产额具有一定分散,相对原子质量在 85-105、125-145 之间 分散较为明显。且对于 ²³⁸U 裂变截面数据的测量工作国内尚未大量开展,因此,准 确测量 14MeV 能区中子诱发 ²³⁸U 独立裂变道截面数据对核数据的完善和优化具 有积极的参考意义。

1.2 本论文工作

本工作以纯度为 99.5%的硝酸铀酰(分子式为 UO₂(NO₃)₂)作为铀样品,利用纯 度为 99.9%的铝材料制作监督片,使用相对测量法测量快中子与 ²³⁸U 的核反应截 面,通过中国工程物理研究院二所的中子发生器生成 14MeV 能区中子对铀样品进 行辐照。利用辐照期间的伴随α粒子对中子注量率进行实时监测,用于修正中子注 量率波动修正。样品经过辐照和必要的冷却之后,使用经过探测效率校准过的低 本底高纯锗探测器对活化产物的缓发伽马射线进行跟踪测量,甄别出相应核素,并 通过中子活化分析和相对测量法核反应截面计算公式计算出快中子诱发 ²³⁸U 独 立裂变对应反应道的反应截面。

在实际测量中,由于束流流强及能量不稳定,竞争反应等因素会导致辐照过程 出现中子通量波动,因此选择合适的材料作为监督片对核素进行相对测量来避开 计算中较难讨论的中子注量率波动并通过α粒子对中子通量的实时监测数据为依 据进行中子注量率波动修正。此外由于样品具有一定形状和厚度,特征伽马射线 穿透物质会损失部分能量,实验数据处理过程中应考虑γ射线的自吸收修正。由于 对探测效率进行校准时用点源近似样品几何形状,需要进行几何修正。此外,伽马 射线的级联符合会导致探测器全能峰计数与真实情况不符,故还需要进行相应的 级联符合修正。

第二章 基本原理

2.1 中子与物质相互作用

2.1.1 相互作用类型概述

中子由于本身所带净电荷为零,一方面中子不能与核外电子发生电磁相互作 用,另一方面中子不受原子的库伦场影响,即使携带较低能量的中子也能引起核反 应并主要通过与核相互作用的方式损失自身能量,中子与物质相互作用类型依据 作用结果的不同可以分为散射和吸收两大类。中子的吸收均具有中子与靶核形成 复合核的过程。靶核吸收入射中子并释放出γ射线的过程称为辐射俘获(n,γ); 靶 核吸收入射中子后发射带电粒子或者多个粒子的过程,分别记为(n,X)、(n,2n)、 (n,3n)等,例如(n,p)、(n,α)等反应; 某些重核吸收中子后,原子核跨过势垒分裂成两 部分发生核裂变反应(n,f)。

2.1.2 核反应截面及中子通量密度

(1) 微观截面

设σ为靶物质与中子相互作用的微观截面,I为单能中子束的强度(单位时间内 有 I 个中子通过垂直中子飞行方向的单位面积),N 为靶的核密度,Δx 为靶厚度,则 中子束穿越靶物质前后单位面积上中子数量变化为:

$$\Delta I = -\sigma I N \Delta x \tag{2.1}$$

微观截面:

$$\sigma = \frac{-\Delta I}{IN\Delta x} \tag{2.2}$$

可以看出σ可用于描述具有某一能量的中子与靶中一个靶核相互作用的概率, 同时由微观截面的定义,我们可以知道:

散射截面σ_s等于非弹性散射截面σn,n`与弹性散射截面σn,n 之和:

$$\sigma_s = \sigma n, n' + \sigma n, n \tag{2.3}$$

吸收截面σ_a等于辐射俘获截面σn,γ,带电粒子和多粒子发射的相互作用截面 σn,p、σn,α、σn,2n、σn,3n、......与核裂变截面之和:

$$\sigma_{a} = \sigma n, \gamma + \sigma n, p + \sigma n, \alpha + \sigma n, 2n + \sigma n, 3n + \dots + \sigma n, f$$

$$(2.4)$$

总截面or即所有可能发生的相互作用截面之和为:

$$\sigma_T = \sigma n, p + \sigma n, \gamma + \sigma n, \alpha + \sigma n, n + \sigma n, n + \sigma n, 2n + \sigma n, 3n + \dots + \sigma n, f$$
(2.5)

(2) 宏观截面

设 I₀为入射前中子束流强度,I(x)为中子束穿过厚度为 x 的靶物质后的中子束的强度,x 为中子束穿过的靶厚度,σ为该单能中子束与靶核相互作用的微观截面,N 为靶核密度,由:

$$dI = -\sigma NI(x)dx \tag{2.6}$$

可以得到中子束强度随靶厚度变化的关系式:

$$I(x) = I_0 e^{-\sigma Nx} = I_0 e^{-\sum \cdot X}$$
(2.7)

Σ称为宏观截面,它的物理意义为单个中子与单位体积内所有靶核发生相互作用的概率或者单个中子穿越单位距离与靶核发生相互作用的概率。

(3) 中子通量密度

n为中子密度,u为中子的速率,中子通量密度:

$$= nu$$
 (2.8)

表示单位时间中单位体积的中子行进的总路程或单位面积上单位时间内穿 过该面积的中子数。

ø

2.2 核裂变反应理论及相关概念

1939年,哈恩利用中子轰击铀核诱发铀核发生裂变。自此,利用中子轰击与裂变相关的核素来诱发裂变事件的工作被广泛的开展。人们利用不同能量的中子来轰击这些核素,用以研究中子诱发裂变反应的裂变速率,裂变中子产额以及裂变反应释放的能量,现在我们能够利用已知理论对不同能量中子诱发核裂变反应的裂变率进行计算。

在哈恩发现中子诱发铀核裂变后不久,波尔和惠勒使用液滴模型对裂变机制进行了理论解释,当一些重核受到中子轰击时,靶核与中子形成复合核,中子的能量转变为复合核的动能和内能,使得复合核内各核子激烈振荡,原子核开始产生形变,在形变过程中,核子间的核力随着距离增大而逐渐减小,当原子核的形变过大被拉的过长,逐渐减弱的核力不能再使原子核的形变得到恢复,原子核得以分裂并在两碎片间静电力的作用下向相反的方向飞去^[3]。

液滴模型将原子核比作带电液滴,当中子被捕获时原子核如同液滴一样发生 "晃动"。原子核的结合能包含有表面能和库伦能,随着原子核的形变增大,原子 核的表面能增大,库伦能减小,表面能和库伦能综合在一起表现为一个势垒,一般 来说,当原子核的激发能高于或者等于裂变势垒时裂变反应才能得以发生。

裂变反应又分为自发裂变和诱发裂变,一方面基态核有一定可能性通过量子 隧道效应越过裂变势垒发生裂变反应,这样的裂变过程称为自发裂变;另一方面,

当重核受到外来因素影响,使得激发能高于裂变势垒,受激发的重核具有相对于自发裂变高得多的裂变概率,这样的过程称为诱发裂变。

在核裂变反应发生之后,裂变碎片在质子的静电力作用下相互远离,原子核的 形状迅速恢复为球形,形变的能量转变为原子核的激发能,原子核需要通过释放中 子或者发射γ射线来退激发,这个过程中释放的中子称为瞬发中子,相应的伽马射 线称为瞬发γ射线。退激发至基态的裂变碎片大多中质比较高,需要通过一连串β 衰变变成稳定核素。在某些衰变过程中会释放中子,该中子称为缓发中子,同时β 衰变可能生成激发态子核并通过发射γ射线进行退激,这些γ射线被称为缓发γ射 线。

裂变产额的定义为在一次裂变反应中某种裂变碎片生成的概率,裂变反应过 程中生成产物的产额可以划分为三种。直接由原子核裂变获得的某种核素数目占 裂变事件总计数的份额称为独立产额;直接由裂变反应以及前驱核素间接生成的 某种核素数目占裂变事件总计数的份额称为累计产额;某一类由核裂变直接生成 质量数等于某个特定值的全部核素数目占裂变事件总计数的份额称为链产额,由 定义,测定某种核素或者某类核素的裂变产额需要同时知道该系统中的裂变事件 总计数和生成每种核素的数目^[4]。

2.3 实验数据分析原理

2.3.1 中子活化法测量截面的基本原理

中子活化分析是利用中子源产生的中子对样品进行轰击,通过监测活化产物 释放的射线性质及射强度进而测量样品中元素种类和含量的方法,本文工作使用 氘氚反应获得的14MeV能区中子对硝酸铀酰样品进行适当的辐照和冷却,利用低 本底高纯锗探测器对裂变反应碎片衰变时释放的缓发γ射线的能谱进行测量,通 过缓发伽马射线的能量确定14MeV能区中子诱发²³⁸U裂变反应以及前驱核素间 接产生的某种核素种类,并利用能谱上相应射线的全能峰净计数计算对应裂变反 应道的反应截面。中子活化法准确性和灵敏度较高,在不破坏样品的情况下能够 同时测量多种核素的种类和含量,在实验中运用的越来越广泛。

本次实验中,我们对样品进行 T₁时间的 14MeV 能区中子辐照,辐照后冷却 T₂时间,立刻使用低本底高纯锗探测器进行了为时 T₃的能谱测量。辐照过程中一般情况下,我们认为铀样品的损耗可以忽略不记,即认为样品中的靶核密度为常数,故而在样品受到中子辐照过程,单位时间目标放射性核素的生成数目为:

$$N = \frac{N_A M \eta \phi \sigma}{A} \tag{2.10}$$

根据实验条件和核反应截面定义,N_A为阿伏伽德罗常数,M为样品中铀元素的 质量,η为该样品中²³⁸U的核素丰度,A为²³⁸U的原子量,Φ为辐照过程中的中子平 均注量率,σ为该反应的反应截面^[5]。此外目标核素在因辐照生成的同时以每秒 λ·N₁个数量衰变,λ为目标核素的衰变常数。故目标放射性核素在辐照过程中(即 0<t<T₁)的变化率为:

$$\frac{dN_1}{dt} = \frac{N_A M \eta \phi \sigma}{A} - \lambda N$$
(2.11)

由此可求得在辐照过程 0-T₁时段内,样品中目标核素的数量随时间变化关系为:

$$N_{1} = N_{A} M \eta \phi \sigma \left(1 - e^{-\lambda t} \right) \frac{1}{A\lambda}$$
(2.12)

当辐照刚好结束时,样品中的目标核素的数量为:

$$N_1 = N_A M \eta \phi \sigma \frac{S}{A\lambda} \tag{2.13}$$

式中 S=1-e^{-λt}称作饱和因子,当样品放置冷却时,样品中的目标核素仍以每秒 λ·N₁的数量进行衰变,则在 T₁<t<T₂时间段内,样品中的目标核素数量随时间的变 化关系为:

$$N_{1} = \frac{N_{A} M \eta \phi \sigma S e^{-\lambda (t-T_{1})}}{A \lambda}$$
(2.14)

当测量开始时即 t=T1+T2时,样品相应核素的数量为:

$$N_1 = N_A M \eta \phi \sigma S \frac{e^{-\lambda T_2}}{A\lambda}$$
(2.15)

在经过 T3时间的测量过程中,相应核素发生衰变的核的总数应为:

$$N_2 = N_A M \eta \phi SD \frac{1}{A\lambda}$$
(2.16)

其中 D 称作测量收集因子

$$D=e^{-\lambda T_3}\left(1-e^{-\lambda T_2}\right)$$

则生成该目标核素的核反应反应截面应为:

$$\sigma = \frac{N_2 A \lambda}{N_4 M \eta \phi S D} \tag{2.17}$$

在实验中,我们使用高纯锗半导体探测器对活化产物的伽马能谱进行测量,并

选取精度较大且具有某一能量强度为 L_γ的特征伽马射线进行计数,由于探测器不能探测到所有的衰变事件,具有一定的探测效率ε,假设探测器测得某一特征峰的 伽马射线计数为 N₃,则:

$$N_2 = \frac{N_3}{\varepsilon I_v} \tag{2.18}$$

结合式(2.17)和(2.18)可得:

$$\sigma = \frac{N_3 A \lambda}{N_A M \eta \phi SD \varepsilon I_{\gamma}}$$
(2.19)

2.3.2 中子活化法测量反应截面的相关修正

在实验中,一些因素会导致裂变截面数据测量的不准确。在我们讨论利用高纯 锗半导体探测器对特征伽马射线进行计数时,认为活化样品是一个理想化的点源, 事实上在实际测量中,活化样品具有一定的横截面积和厚度,需要对活化样品的几 何形状进行修正。当对活化样品的缓发伽马能谱进行测量时,由于探测器的分辨 时间相对较长,导致若干伽马射线间出现级联符合效应,从而影响对全能峰的计数 不同于实际情况。由于存在竞争反应等会导致辐照过程出现中子通量波动,通过 选择合适的材料作为监督片对核素进行相对测量来消除中子活化法测量裂变截 面公式中较难测量练的中子注量率并对测量结果进行中子注量率波动修正。此外 由于样品具有一定形状和厚度,导致特征伽马射线穿透物质过程中会损失部分能 量,需要对结果进行自吸收修正。

(1) 对活化样品几何形状的修正

在对探测器进行刻度和对样品缓发伽马能谱测量的过程中,标准源和活化样品的横截面积及厚度存在差异,由于样品的不同部分对探测器所成的立体角不同,故不同大小的样品和标准源之间的几何效率存在差异,需要对样品的几何效率进行修正。

如图 2.1,活化样品为具有厚度为 h、半径为 R₁ 的圆柱体,其距离探测器的距离 为 d 且与探测器在同一中心线上,探测器的入射窗半径为 R₂。以活化样品的底面 圆心 O 点为原点建立球形坐标系。将圆柱体视为若干厚度极小的面源叠加并认 为放射性核素在圆柱体内均匀分布,从样品上任一点出发的射线沿出射方向落在 探测器入射窗上,该射线才有可能被记录。设(θ,φ,r)为面源发射伽马射线的方 向,S(θ,φ,r)为面源沿(θ,φ,r)方向投影至高纯锗半导体探测器入射窗的面积,使用文 献⁶的方法可计算出相应的几何因子:

$$F_{g} = \frac{2\pi (1 - \cos \theta_{0})}{\frac{1}{\pi R_{1}^{2}} \iiint_{(0,0,d)}^{(\theta_{0},2\pi,d+h)} S(\theta,\varphi,z) \sin \theta d\theta d\varphi dz}$$
(2.20)

在本实验条件下的计算出的 Fg 为:



图 2.1 源与探测器几何位置图

(2) 对特征伽马射线探测时的自吸收修正

样品是具有一定厚度和横截面大小的圆柱体,当伽马射线穿过物质时,射线与物质可能发生光电效应,康普顿散射和电子对效应三种相互作用过程,伽马射线在一次作用中损失全部能量或者偏离原来行进的方向,因此,穿过具有一定厚度物质后探测到的伽马射线计数与活化样品释放的伽马射线数量存在差异,需要对这一差异提出修正^[7]。当样品被视为一个分布均匀的圆柱体时,自吸收修正因子 F。可表示为:

$$F_{S} = \frac{u_{m}d_{m}}{1 - e^{-u_{m}d_{m}}}$$
(2.22)

其中 dm(g/cm²)为圆柱形样品的质量厚度,um(cm²/g)为样品对不同能量的特征 γ 射线的质量吸收系数,通过网站^[8]可以查询样品对应不同能量特征伽马射线的质量吸收系数,带入式 2.22 中可计算得到对应修正因子 F_s。

(3) 对特征伽马射线级联符合效应的修正

在射线能谱的测量中,与衰变事件相关的射线发生级联符合效应是非常普遍的现象,常见的级联符合现象包括γ射线与γ射线、γ射线与 X 射线以及γ与湮灭光 子间的级联符合,一般实验中只考虑相对数量较多的γ射线与γ射线间的级联符 合。



图 2.2 具有三个能级衰变子核 Z 的衰变纲图

在一种简单的情况下,如图 2.2 是一个具有三个能级衰变子核 Z 的衰变纲图, 当衰变过程中子核激发态的寿命较短时,由于探测器存在一定的分辨时间,会发生 γ₂₁射线和γ₁₀射线能量同时沉积在探测器中的情况,由于两射线能量总和相加等于 γ₂₀射线的能量,此时会造成探测器误以为探测到γ₂₀射线从而造成γ₂₀射线的全能 峰计数增加,γ₂₁射线和γ₁₀射线的计数减少的现象。这种级联符合现象的计数率与 γ₂₁、γ₁₀射线的探测效率ε^P₂₁、ε^P₁₀有如下关系:

$$n = A \cdot \varepsilon_{21}^{P} \cdot \varepsilon_{10}^{P} \tag{2.23}$$

其中,A 表示放射性物质的活度,随着探测器距离放射性物质距离变大时,被测物质对探测器所张立体角会减小,使得探测器对射线的几何探测效率减小,从而减小级联效应对实验结果的影响。

将伽马射线的级联符合修正系数定义为[9]:

$$F_{ij} = \frac{S_{ij}}{S_{ij}}$$
(2.24)

在忽略射线间级联符合现象时,用 S_{ij}表示探测器探测到的相应γ_{ij}射线的计数 率;当射线间级联符合现象被考虑时,用 S`_{ij}表示探测器探测到相应γ_{ij}射线的计数 率。用 f_i表示前驱核素衰变到子核 i 能级上的分支比,用 x_{ij}表示衰变产物产生的 伽马射线γ_{ij}对应的分支比,用α_{ij}表示相应γ_{ij}的内转换系数并分别使用ε^p_{ij}、ε^t_{ij}和 A 表示探测器对对应γ_{ij}的全能峰探测效率、全谱探测效率以及衰变产物的活度。则 可算得 S₁₀、S`₁₀和 F₁₀分别如式 2.25、2.26 和 2.27 所示:

$$S_{10} = Af_1 x_{10} \frac{1}{1 + \alpha_{10}} \varepsilon_{10}^P + Af_2 x_{21} x_{10} \frac{1}{1 + \alpha_{20}} \varepsilon_{10}^P = P_{10} \varepsilon_{10}^P$$
(2.25)

$$S_{10} = Af_1 x_{10} \frac{1}{1 + \alpha_{10}} \varepsilon_{10}^P + Af_2 x_{21} x_{10} \frac{1}{1 + \alpha_{20}} \varepsilon_{10}^P - f_2 x_{21} x_{10} \frac{\varepsilon_{10}^P \varepsilon_{21}^t}{(1 + \alpha_{20})(1 + \alpha_{21})}$$
(2.26)

$$F_{10} = \frac{S_{10}}{S_{10}} = \frac{P_{10}\varepsilon_{10}^{P}}{P_{20}\varepsilon_{20}^{P} - \frac{P_{21}\varepsilon_{10}^{P}\varepsilon_{21}^{t}}{(1+\alpha_{10})}} = \frac{1}{1 - \frac{P_{21}\varepsilon_{21}^{t}}{P_{10}(1+\alpha_{10})}}$$
(2.27)

其中,
$$P_{10} = Af_1 x_{10} \frac{1}{1+\alpha_{10}} + Af_2 x_{21} x_{10} \frac{1}{1+\alpha_{10}}$$

$$P_{21} = Af_2 x_{21} \frac{1}{1 + \alpha_{21}}$$

P_{ij}为衰变子核单位时间内发射出来的γ_{ij}数量,根据该方法可计算出 F₂₁、F₂₀分 别如式 4.28 和式 4.29 所示:

$$F_{21} = \frac{1}{1 - \frac{x_{10}\varepsilon_{10}^{t}}{1 + \alpha_{10}}}$$
(2.28)

$$F_{20} = \frac{1}{1 + \frac{P_{21}\varepsilon_{21}^{P}\varepsilon_{10}^{P}}{P_{20}\varepsilon_{20}^{P}(1 + \alpha_{10})}}$$
(2.29)

其中, $P_{20} = Af_2 x_{20} \frac{1}{1 + \alpha_{20}}$

对于三个能级以上的级联符合效应修正因子求法可参考文献^[10]。 (4) 对由于中子注量率不稳定引起误差的修正



图 2.3 分时间间隔测量中子注量率示意图

在对样品开展中子辐照过程中,中子注量率并不同于理论上假设的常量,中子 注量率常由于氘束的束流强度的波动而发生变化。因此在进行数据分析时不能将 中子注量率认为是一个常量,并通过将辐照过程划分为若干时间间隔,当时间间隔 足够小时可近似认为中子注量率在各个时间间隔内为常量。同时认为辐照过程引 起的样品损耗足够小,将靶核数量视为常数。

如图 2.3,将样品受辐照时间等分为 n 份,令 S_i为第 i 个时间间隔的辐照时间, 通过监测伴随α粒子可以确定第 i 个时间间隔的中子注量率Φ_i,t_i表示从第 i 个时间 间隔结束到辐照过程结束的时间间隔。由以上假设,目标核素在 S_i时间间隔内产 生并经过冷却时间后在能谱测量开始时的数目为:

$$N_{i} = \frac{MN_{A}\eta\phi_{i}\sigma}{A\lambda} \left(1 - e^{-\lambda S_{i}}\right) e^{-\lambda T_{2}} e^{-\lambda t_{i}}$$
(2.30)

在测量开始时样品中总的目标放射性核素数目为:

$$N(T_1 + T_2) = \frac{MN_A \eta \sigma}{A\lambda} e^{-\lambda T_2} \sum_{i=1}^{i=n} \phi_i \left(1 - e^{-\lambda S_i}\right) e^{-\lambda t_i}$$
(2.31)

在测量开始 t 时间后目标放射性核素单位时间内发射的某一特征伽马射线的数量为:

$$N_{\lambda} = \lambda N (T_1 + T_2) e^{-\lambda t} I_{\gamma}$$
(2.32)

对 N_{\label}从探测开始即 t=0 至 t=t3 时间段上进行定积分并乘以相应的探测效率即 可得探测器相应能量伽马射线得计数为:

$$FC = \int_{0}^{T_3} \frac{MN_A \eta \sigma}{A} e^{-\lambda T_2} \sum_{i=1}^{i=n} \phi_i \left(1 - e^{-\lambda S_i}\right) e^{-\lambda t_i} e^{-\lambda t} I_{\gamma} \varepsilon^P dt \qquad (2.33)$$

将式 2.33 与式 2.16 对比可得对中子注量率变化引起误差的修正为:

$$K = \frac{\sum_{i=1}^{i=n} \phi_i \left(1 - e^{-\lambda S_i}\right) e^{-\lambda t_i}}{S\phi}$$
(2.34)

其中
$$\phi = \sum_{i=1}^{i=n} \phi_i S_i \frac{1}{T_i}$$

在考虑以上四个修正后得到样品截面的表达式为:

$$\sigma = \frac{FCA\lambda}{MN_A \eta \phi I_{\gamma} \varepsilon KSD}$$
(2.35)

2.3.3 利用监督片测量核反应截面

由于式 2.19 中涉及到参数中子注量率Φ,实际辐照过程中中子注量率可能随时间出现一定的变化,使得计算出的结果与实际情况存在较大的误差,常用的做法 是寻找一种在 14MeV 能区截面已知的材料作为监督片与样品一同辐照,利用监督 片截面已知的条件从原理上除去由于难以测量的中子注量率Φ的波动给截面计 算带来的困难。利用式 2.35,监督片的截面为:

$$\sigma_{0} = \frac{\left[FCA \ \lambda\right]_{0}}{\left[MN_{A}\eta\phi\ I_{\gamma}\varepsilon KSD\right]_{0}}$$
(2.36)

样品的截面为:

$$\sigma_{x} = \frac{\left[FCA \ \lambda\right]_{x}}{\left[MN_{A}\eta\phi I_{\gamma}\varepsilon KSD\right]_{x}}$$
(2.37)

辐照过程中,铝监督片与样品一同辐照,故Φx=Φ0,将上述两式联立可得:

$$\sigma_{x} = \frac{\left[M\eta I_{\gamma} \varepsilon KSD\right]_{0}}{\left[M\eta I_{\gamma} \varepsilon KSD\right]_{x}} \cdot \frac{\left[FCA\lambda\right]_{x}}{\left[FCA\lambda\right]_{0}} \cdot \sigma_{0}$$
(2.38)

上述的方法称为相对测量法,本实验利用常见的铝片作为监督片,辐照过程中监督片发生²⁷Al(n,α)²⁴Na反应,其相关参数如表 2.1 所示。

表 2.1	监督片厂	L何参数和活化产	物衰变数据
-------	------	----------	-------

厚度(mm)	靶核丰度(%)	反应道	T _{1/2} (h)	E _γ (keV)	$I_{\gamma}(\%)$
0.05	100	27 Al(n, α) ²⁴ Na	14.997	1368.6	99.9936

第三章 实验仪器及实验过程

3.1 实验仪器

3.1.1 中子源

自然界中自由中子的半衰期约为十分钟,实验中需要获取稳定能量及中子注 量率的中子束要求使用专用于生成满足实验需求中子的中子源,常用中子源利用 反应堆、同位素和加速器获取中子,本实验使用的即为加速器 D-T 中子源,通过被 加速的氘束轰击靶核发生 T(d,n)⁴He 反应生成特定能区的中子束。D-T 中子源产 生的中子束能量与被加速氘束的动能 E_d、中子出射角θ满足式 3.1:

$$E_n = \frac{E_d m_d m_n}{\left(m_b + m_n\right)^2} \left\{ \cos\theta + \sqrt{\cos^2\theta + \frac{m_B \left(m_B + m_n\right)}{m_d m_n} \left[\frac{Q}{E_d} + \left(1 - \frac{m_d}{m_B}\right)\right]} \right\}^2 \quad (3.1)$$

(式中mn为中子质量,mB为反冲核质量,md为氘核质量)

本实验依托中国工程物理研究院二所的强流中子发生器开展,分别在中子出 射角为 0°、45°和 90°方向上进行 1-3 号样品的中子辐照实验,通过计算实验过 程中 ⁹⁰Zr(n,2n)⁸⁹Zr 与 ⁹³Nb(n, 2n)^{92m}Nb 反应截面比和已知数据与中子能量关系进 行对比可以测得各个样品受辐照中子的相应平均能量如下表所示:

表 3.1 实验样品与辐照中子的平均能量对应关系表

样品序号	1号样品	2号样品	3号样品
中子平均能量(MeV)	14.7 ± 0.3	14.5 ± 0.3	14.1 ± 0.3

3.1.2 伽马能谱测量装置

²³⁸U 经中子活化后能生成各种裂变碎片,裂变碎片自身由于不稳定会继续衰 变并伴随发射具有特定能量的伽马射线,由于裂变产物众多,每种产物还会发射不 同分支比的伽马射线,各种射线的峰很可能发生相互叠加的现象,由此对伽马能谱 测量仪器的分辨率和测量空间自然辐射屏蔽提出了较高的要求。

本实验选择具有较高能量分辨率的高纯锗半导体探测器和计算机多道分析 处理系统,其结构方框图如图 3.1 所示:



图 3.1 测量系统结构图

高纯锗探测器的能量分辨率能达到千分之一,能够理想地减少伽马射线能谱 堆积的现象。除此以外,本实验使用由铅、有机玻璃、钢板以及铜组成的屏蔽层 屏蔽自然存在的本底辐射和宇宙射线,自然界中存在天然的放射性核素、宇宙射 线和人工放射源均有可能对能谱测量造成影响,必须使用符合要求的屏蔽层对探 测器进行防护减少本底带来的计数干扰。图 3.2 为活化实验前使用半导体探测器 对 ²³⁸U 样品的本底能谱的测量能谱,结果显示本底中存在一些计数较大的峰可能 会对活化产物的伽马能谱分析和计数带来影响,应对这些峰位和计数尤为注意且 在数据处理中应仔细辨别扣除这部分计数。



3.2 实验过程

3.2.1 样品制备

本实验使用纯度好于 99%的硝酸铀酰 UO₂(NO₃)₂ 作为 ²³⁸U 样品,制备过程如下:

(1) 首先将承装器皿檫干并进行称重,将 UO₂(NO₃)₂•6H₂0 加入承装器皿一同称重并分多次进行脱水,脱水后与器皿一同称重计算得到 UO₂(NO₃)₂ 的净重为 6.9571g。

(2) 向脱水后的样品中加入 1.1474g 的聚乙烯材料充分混合溶解,将样品分成 三份分别编号为 1、2、3 号样品。

(3) 在通风干燥的环境下使用液压机将三分样品压制成圆饼状并测量得到混

合物样品的质量和几何参数如表 3.2 所示。

(4) 使用纯度好于 99.99%的铝片制备为与样品尺寸一致的圆片,为每个样品 配置两个铝片并分别进行称重,测量结果记录如表 3.3 所示。

样品编号	厚度(cm)	直径(cm)	质量(g)	体积(cm ³) 密/	芟(g/cm ³)
1	0.4260	1.3420	0.7600	0.6026		1.2613
2	0.4505	1.3850	0.8487	0.6787		1.2505
3	0.5430	1.4425	1.1831	0.8874		1.3332
表 3.3 监督片质量						
样品	1 5	1号样品		羊品	3号	样品
监督片编号	#1	#2	#1	#2	#1	#2
监督片质量(g)	0.0386	0.0443	0.0419	0.0399	0.0403	0.0418

表 3.2 样品的质量和几何参数

3.2.2 样品的辐照和冷却

本实验的辐照通过中国工程物理研究院二所的加速器中子源利用氘氚反应 产生的 14MeV 能区中子对 ²³⁸U 样品开展中子辐照,通过辐照过程伴随α粒子对中 子注量率进行监测和记录,并将监测数据用于中子注量率变化引起误差的修正。 中子源的相关数据如表 3.4 所示:

表 3.4 中子源相关参数

反应	氘束平均能量 Ed(keV)	東流强度(μA)	中子产额(x10 ¹⁰ n/s)
T(d,n) ⁴ He	134	230	4.5

将1、2、3号样品分别置于出射角为0°、45°和90°的中子出射方向上以获得当中子能量为14.7MeV、14.5MeV和14.1MeV时²³⁸U样品与这三种能量中子发生裂变反应各反应道的反应情况,并通过计算铌锆截面比值确定辐照过程中子的平均能量。

由于我们需要获取尽可能多的²³⁸U与中子独立裂变道裂变数据,应该选择合适的辐照距离和足够的辐照时间以获得足够核裂变事件,裂变反应生成的不稳定 子核个数随时间呈指数衰减,为了防止一些短寿命核素由于冷却时间过长而导致 的计数损失,应在实验安全的条件下选择尽可能短的冷却时间,表 3.5 是本实验选 用的辐照时间和冷却时间。

样品	1号样品	2号样品	3号样品
辐照时间(s)	7100	6440	7540
冷却时间(s)	320	318	272

表 3.5 各样品受辐照时间和冷却时间表

3.2.3 活化产物伽马能谱的测量

(1) 探测器的能量刻度和效率刻度

在利用高纯锗探测器进行对活化产物的伽马能谱测量之前,应利用特征伽马 射线峰位和活度已知的标准源对探测器进行能量刻度和探测效率刻度,通常情况 下,探测器的道址 x 和对应的伽马射线能量 Eγ满足关系式:

$$E_{\gamma} = G \cdot x + E_0 \tag{3.2}$$

利用探测器测量特征伽马射线能量已知的多个标准源的伽马能谱,可以获得 相应能量对应的道址,并通过最小二乘法能够拟合出探测系统道址与真实伽马射 线能量对应的线性关系。

探测效率的定义为一段时间内探测器探测接收到的光子数与某放射性核素 放射光子数的比值,在已知探测器探测效率的情况下通过探测器对伽马能谱某一 射线的计数能反推出活化产物的活度,从而反推出活化产物在中子辐照过程中的 生成情况。对于不同能量的伽马射线,探测器本身的几何形状以及活化产物与探 测器之间的几何关系都会影响到探测效率的数值,在进行伽马能谱测量以前同 y 样需要利用标准源对探测器进行探测效率的刻度。用于能量和效率刻度的标准源 信息如表 3.6 所示:

标准源	半衰期(d)	E _γ (keV)	Ιγ	用源时活度(Bq)	活度误差(Bq)
¹³⁷ Cs	10983.0675	661.66	0.851	31992.60	639.85
⁶⁰ Co 1925.3789	1025 2780	1173.24	0.999	8205.84	1 (1 1 2
	1923.3789	1332.50	0.9998	8203.84	104.12
¹⁵² Eu 4946.2155		121.78	0.284		
	244.70	0.075			
	4946.2155	344.28	0.266	20370.11	407.40
		411.12	0.022		
		443.98	0.028		

表 3.6 标准源信息

778.91	0.130
867.39	0.042
964.13	0.143
1085.91	0.099
1112.12	0.136
1212.95	0.014
1299.12	0.016
1408.01	0.209

本实验使用探测器对活度已知的多个标准源的伽马能谱进行测量,测量特征 伽马射线的全能峰净计数 N,设探测器对该伽马射线的探测效率为ɛ,t 为对该射线 的探测时间,则有:

$$N = A\varepsilon I_{\gamma} t \tag{3.3}$$

式中A为用源时的活度,I_v为进行探测的特征伽马射线的分支比,可以推得探测器的探测效率为:

$$\varepsilon = \frac{N}{AI_{\gamma}t} \tag{3.4}$$

(2) 活化产物伽马能谱的测量

在活化产物中存在很多寿命短至数分钟或者长至数小时的放射性核素,或者 在²³⁸U裂变反应中生成截面很小的核素,想要尽可能获得生成这些核素的裂变反 应信息,需要采取源到探测器的距离尽可能短的几何条件以及合适的测量时间,才 能够获得尽可能多的反应信息,本实验中采用的测量时间如表 3.7 所示:

表 3.7 各样品的伽马能谱测量时间及相应测量活时间

样品	1号样品	2号样品	3号样品
Realtime(s)	5562.98	5572.82	5569.34
Livetime(s)	5117.80	5044.26	4767.98

在伽马能谱测量中,为得到更多的计数,源到探测器的距离设置的较近,导致探测器的死时间较大,在进行数据分析时采用文献^[11]中给出的办法对死时间进行校正。

虽然本实验在伽马能谱的测量过程中采用了能量分辨率较好的高纯锗低本

底半导体探测器,但仍然可能存在干扰核素能谱和目标核素能谱叠加的情况,因此 测量过程中,采取一定时间间隔多次记录能谱的的方式,利用不同时段能谱中同一 峰位的计数之差能够有效减小短寿命或者长寿命核素对待测核素测量结果的影 响,提高实验结果的准确性。

第四章 实验结果及数据处理

4.1 实验结果

4.1.1 中子注量率监测

利用伴随α粒子对三个样品分别在位于中子出射角为0°、45°和90°受辐 照过程中的中子注量率进行每二十秒一次的跟踪监测,中子注量率监测结果如图 4.1、4.2、4.3 所示:



图 4.2 2 号样品中子注量率随时间变化



图 4.3 3 号中子注量率随时间变化

由于目前加速器中子发生器的技术限制,难以做到将中子注量率维持在稳定 值,正如测量结果显示,中子注量率随时间在一定范围内存在波动,会对计算结果 造成一定的影响,有必要在数据分析时按照式 2.34 进行中子注量率波动修正。





图 4.5⁶⁰Co 的伽马能谱



4.1.3 监督片活化能谱测量结果

由于中子注量率随时间存在波动,需要利用监督片与样品一同进行辐照,利用 相对测量法对监督片计数后按式 2.38 计算样品的裂变截面数据,图 4.7 至图 4.9 分 别表示 1 号、2 号和 3 号样品相应监督片的活化能谱测量结果。



图 4.8 2 号样品监督片活化能谱



图 4.93 号样品监督片活化能谱

利用监督片特征峰计数, 辐照时间和已经测得的对应不同中子能量下 ²⁷Al(n,α)²⁴Na反应的截面数据并结合待测核素特征伽马峰的信息及式 2.38 可以计 算得到待测核素的生成截面。其中 ²⁷Al(n,α)²⁴Na反应随中子能量变化的截面数据 如图 4.10 所示。



图 4.10 中子能量与监督片反应截面关系图



4.1.4 样品活化能谱测量结果





图 4.13 3 号样品活化能谱

图 4.11 至图 4.13 展示了三个样品的活化能谱,得益于低本底高分辨率的探测 系统和高效计算机软件,我们仍能良好地在复杂的谱图中分辨出待测核素的特征 峰并进行计数。

4.2 探测效率刻度及修正因子的计算

4.2.1 效率刻度曲线

E _γ (keV)	探测效率ε	探测效率误差
1174.80	0.00513	0.000112
1334.26	0.00461	0.000102
662.00	0.00764	0.000157
121.78	0.01915	0.000386
244.70	0.01463	0.000304
344.00	0.01173	0.000238
367.78	0.01156	0.000320
411.00	0.01026	0.000241
688.68	0.00754	0.000233
778.90	0.00657	0.000138
867.00	0.00589	0.000137
919.00	0.00584	0.000246
964.00	0.00565	0.000119
1085.00	0.00543	0.000117
1112.10	0.00528	0.000112
1299.00	0.00459	0.000135

表 4.1 标准源特征伽马射线能量及相应探测效率

利用式 3.4 可计算得探测器对各标准源的特征伽马射线的探测效率如表 4.1 所示, 由上述数据我们能够拟合出探测器的效率刻度曲线图 4.14 和相应的效率刻度函 数为:



4.2.2 待测核素相关参数

通过核素图及美国国家核数据中心 NNDC 的核数据,列举出待测核素及其分 支比较大的特征伽马射线,通过在能谱中寻找对应特征伽马射线的峰位并确定衰 变常数适宜的核素,我们找到¹⁰¹Mo、¹⁰¹Tc、¹³¹Sb 和¹³¹Te,现将相应核素的特征伽 马射线及其分支比等参数列举如表 4.2 至 4.5。

核素	半衰期 T1/2(s)	E _γ (keV)	Ι _γ (%)
		127.23	2.86
¹⁰¹ Tc	853.2	306.85	88
		545.06	6
	表 4.3 ¹⁰¹ M	Ao 衰变相关信息	
核素	半衰期 T _{1/2} (s)	E _γ (keV)	Ι _γ (%)
		191.92	19
		590.91	16.4
¹⁰¹ Mo	976	695.6	7.2
	876	1012.47	12.8
		1532.5	6
		2032.11	6.9
	表 4.4 ¹³¹ 5	Sb 衰变相关信息	
核素	半衰期 T _{1/2} (s)	E _γ (keV)	$I_{\gamma}(\%)$
		642.3	23
		933.1	26.1
¹³¹ Sb	1381.8	943.4	47
		1123.6	9.2
		1854.4	4.1

表 4.2¹⁰¹Tc 衰变相关信息

核素	半衰期 T1/2(s)	E _γ (keV)	Ι _γ (%)
		149.716	69
		453.323	18.18
¹³¹ Te	1500	492.66	4.846
		602.309	4.187
		1146.96	4.95

表 4.5¹³¹Te 衰变相关信息

以上四个核素中,¹⁰¹Mo为¹⁰¹Tc的前驱核素,¹³¹Sb为¹³¹Te的前驱核素,通过上述核素的衰变数据以及探测器的能量和效率刻度,并通过对一系列修正后我们能够计算出各个核素的生成截面,但是由于待测核素并不都来自于²³⁸U裂变产生,还有一部分来自于前驱核素的衰变,因此,要测得某个核素的裂变截面还需要利用文献^[12]中提出的方法,利用公式:

$$C_{2} = \left[\frac{I_{\gamma 2}\varepsilon_{2}K_{2}X(\lambda_{2}^{2}S_{1}D_{1} - \lambda_{1}^{2}S_{2}D_{2})M\eta\sigma_{1}}{AF_{2}\lambda_{2}(\lambda_{2} - \lambda_{1})\lambda_{1}}\right] \cdot \left[\frac{F\lambda A}{M\eta I_{\gamma}\varepsilon KSD\sigma}\right]_{m} \cdot C_{m}$$
(4.2)

可以算得由前驱核在辐照、冷却和探测过程中衰变到待测核素引起的探测器 多余计数 C₂,其中 m 表示监督片,1 表示前驱核素,2 表示待测核素,K₂表示多余计 数的中子注量率修正,可以由式 4.3 求得,X 表示由前驱核衰变到待测核素的可能 性。

$$K_{2} = \frac{\lambda_{2}^{2} D_{1} \sum_{i}^{L} \phi_{i} \left(1 - e^{-\lambda_{1} T_{i}}\right) e^{-\lambda_{1} t_{i}} - \lambda_{1}^{2} D_{2} \sum_{i}^{L} \phi_{i} \left(1 - e^{-\lambda_{2} T_{i}}\right) e^{-\lambda_{1} t_{i}}}{\phi \left(\lambda_{2}^{2} S_{1} D_{1} - \lambda_{1}^{2} S_{2} D_{2}\right)}$$
(4.3)

通过待测核素的伽马能谱对应特征峰的净计数减去由前驱核素衰变产生的 多余计数即可算得由裂变直接生成的待测核素引起的伽马射线计数从而由式 2.38 算的待测核素的独立裂变道的裂变截面。

4.2.3 中子注量率修正因子 K 的计算

表 4.6 监督片中子注量率修正

生成核素	中子能量(MeV)	K
	14.7	1.00039
24Na	14.5	0.99949
	14.1	1.00082

生成核素	中子能量(MeV)	Κ
	14.7	0.995
101Mo	14.5	0.966
	14.1	1.051
	14.7	0.995
101Tc	14.5	0.965
	14.1	1.052
	14.7	1.001
131Sb	14.5	0.977
	14.1	1.035
	14.7	1.001
131Te	14.5	0.979
	14.1	1.033

表 4.7 样品中子注量率修正

4.2.4 自吸收修正因子 F_s的计算

通过式 2.22 可以计算得到不同能量特征伽马射线的自吸收修正因子 Fs,其中 um为硝酸铀酰和聚乙烯混合物的质量衰减系数,通过数据库进行查询并代入样品 参数计算,计算结果如表 4.8 所示。

牛己拉圭		Fs			
生风恼系	$E_{\gamma}(\text{kev})$	1 号样品	2号样品	3号样品	
	191.92	1.231	1.243	1.319	
	590.91	1.032	1.034	1.044	
¹⁰¹ Mo	695.6	1.027	1.028	1.037	
	1012.47	1.019	1.020	1.026	
	1532.5	1.015	1.015	1.020	
¹⁰¹ Tc	127.23	1.660	1.697	1.933	
	306.85	1.085	1.090	1.116	

表 4.8 样品中特征伽马射线自吸收修正因子

	545.06	1.036	1.037	1.049
	642.3	1.029	1.031	1.040
	933.1	1.021	1.022	1.028
¹³¹ Sb	943.4	1.021	1.022	1.028
	1123.6	1.018	1.019	1.024
	1854.4	1.013	1.014	1.018
	149.716	1.428	1.451	1.599
	453.323	1.045	1.047	1.061
¹³¹ Te	492.66	1.040	1.040	1.055
	602.309	1.032	1.033	1.043
	1146.96	1.018	1.018	1.024

4.2.5 几何修正因子的计算

样品的几何修正因子可推导为:

$$F_g = \frac{\left(h + \frac{d}{2}\right)^2}{h^2} \tag{4.4}$$

其中 h 为活化样品到探测器窗面的距离,d 为活化样品直径,计算结果如表 4.9 所示。

表 4.9 活化样品几何修正因子

中子能量(MeV)	14.1	14.5	14.7
Fg	1.146	1.120	1.114

级联几何修正因子根据式 2.27 至 2.29 求得,经计算,F。均约等于 1,为简便起见, 均将 F。视为 1 处理。

4.3 待测核素反应截面的计算

4.3.1 对¹⁰¹Tc 裂变截面的计算

通过对式 2.38 及式 4.2 的讨论,要求得 ¹⁰¹Tc 及 ¹³¹Te 的裂变截面,就要先分别 求得其前驱核 ¹⁰¹Mo 和 ¹³¹Sb 的生成截面,并以此计算由前驱核 ¹⁰¹Mo 和 ¹³¹Sb 衰变 成待测核素引起的计数 C₂,将直接测得待测核素的伽马能谱对应特征峰的净计数 减去多余的计数 C₂,再带回至式 2.38 中即可求得待测核素得裂变截面。表 4.10 为 对 ¹⁰¹Mo 生成截面的计算结果。

汗化立物	特征伽马	射线		生成截面σ(mb)	
伯化厂初一	E _γ (keV)	Ι _γ (%)	14.7 ± 0.3 (MeV)	14.5±0.3(MeV)	14.1 ± 0.3 (MeV)
	191.92	19	45.04±2.46	42.20 ± 2.28	50.63 ± 2.71
	590.91	16.4	125.41 ± 8.42	160.90 ± 10.71	131.07 ± 8.70
¹⁰¹ Mo	695.6	7.2	54.59±3.51	52.62 ± 3.33	51.98 ± 3.22
	1012.47	12.8	38.70±1.73	46.16±1.95	40.09±1.64
	1532.5	6	43.93±1.79	49.45±1.77	42.21±1.33
	2032.11	6.9	51.87±2.02	54.95±1.90	43.60±1.34

表 4.10¹⁰¹Mo 生成截面计算值

表 4.10 中未加粗部分全能峰发生明显的堆积且难以计数,我们选取加粗部分数据求平均值并将其作为对应中子能量下¹⁰¹Mo的生成截面。

快中子诱发 ²³⁸U 生成裂变过程中,当中子能量为 14.1±0.3MeV、14.5± 0.3MeV 和 14.7±0.3MeV 时,¹⁰¹Mo 的生成截面分别为 45.70±2.05mb、49.08± 2.25mb 和 46.83±2.30mb。

利用式 4.2 算得 ¹⁰¹Tc 应扣除计数及剩余计数如表 4.11 所示。

活化产	中子能量	特征伽马	的射线	人化收净计数	<u> 古</u> 国公共 发	利人计粉	
物	(MeV)	E _γ (keV)	Ι _γ (%)	王肥暉伊日奴	四扣际日数	和不日奴	
		127.23	2.86	4357	2576	1781	
	14.7	306.85	88	143171	81435	61736	
		545.06	6	9254	3931	5323	
1017.		127.23	2.86	5239	3285	1954	
lorite	14.5	306.85	88	171440	105727	65713	
		545.06	6	11998	5114	6884	
		127.23	2.86	7223	4505	2718	
	14.1	306.85	88	256726	161322	95404	
		545.06	6	19102	7907	11195	

表 4.11¹⁰¹Tc 应扣除计数及剩余计数

将扣除 C₂ 后的剩余计数带入式 2.38 可得 ¹⁰¹Tc 的裂变截面如表 4.12 所示 表 4.12 ¹⁰¹Tc 的裂变截面

汗化 立物	特征伽马	马射线		生成截面σ(mb)	
	E _γ (keV)	Ι _γ (%)	14.7 ± 0.3 (MeV)	14.5±0.3(MeV)	14.1 ± 0.3 (MeV)
1017	127.23	2.86	72.40 ± 3.72	65.41±3.30	59.30 ± 2.09
10110	306.85	88	79.42±5.16	68.35±4.42	58.13±3.75
	545.06	6	141.89±9.89	143.72±9.94	139.16±9.55

表 4.12 中未加粗部分全能峰发生明显的堆积且难以计数,我们选取加粗部分数据求平均值并将其作为对应中子能量下¹⁰¹Tc 的生成截面。

快中子诱发 ²³⁸U 生成裂变过程中,当中子能量为 14.1±0.3MeV、14.5± 0.3MeV 和 14.7±0.3MeV 时,¹⁰¹Tc 的裂变截面分别为 58.72±3.33mb、66.88± 3.86mb 和 75.91±4.44mb。

4.3.2 对 ¹³¹Te 裂变截面的计算

表 4.13 为对 ¹³¹Sb 生成截面的计算结果。

表 4.13	¹³¹ Sb	生成截面计算	疽
--------	-------------------	--------	---

特征伽马		为射线	射线 生成截面σ(mb)		
活化产物	E _γ (keV)	Ι _γ (%)	14.7 ± 0.3 (MeV)	14.5±0.3(MeV)	14.1±0.3(MeV)
	642.3	23	200.82 ± 12.85	182.22 ± 11.59	168.00 ± 10.66
13156	933.1	26.1	28.97±1.33	30.82±1.39	25.63 ± 1.14
	943.4	47	31.11±1.38	29.63±1.29	25.56 ± 1.10
	1123.6	9.2	35.47±1.40	46.78±1.71	39.35±1.38
	1854.4	4.1	23.66 ± 1.24	27.57 ± 1.23	24.58 ± 0.93

表 4.13 中未加粗部分全能峰发生明显的堆积且难以计数,我们选取加粗部分数据求平均值并将其作为对应中子能量下¹³¹Sb 的生成截面。

快中子诱发 ²³⁸U 生成裂变过程中,当中子能量为 14.1±0.3MeV、14.5± 0.3MeV 和 14.7±0.3MeV 时,¹³¹Sb 的生成截面分别为 25.26±1.06mb、29.34± 1.30mb 和 27.92±1.32mb。

利用式 4.2 算得 ¹³¹Te 应扣除计数及剩余计数如表 4.14 所示。

活化产	中子能量	特征伽马射线		人纪政海江粉	成地除斗粉	利会计粉	
物	(MeV)	E _γ (keV)	Ι _γ (%)	王記暉伊日剱	四扣际计数	利 示 日 剱	
¹³¹ Te	14.7	149.716	69	106477	58224	48253	
		453.323	18.18	24274	11480	12794	
		492.66	4.846	5327	2896	2431	
		602.309	4.187	4251	2178	2073	
		1146.96	4.95	3302	1674	1628	
	14.5	149.716	69	133117	73768	59349	
		453.323	18.18	29424	14748	14676	
		492.66	4.846	6801	3729	3072	
		602.309	4.187	5724	2800	2924	
		1146.96	4.95	4231	2153	2078	
	14.1	149.716	69	183248	96188	87060	
		453.323	18.18	43112	20908	22204	
		492.66	4.846	9982	5282	4700	
		602.309	4.187	8497	3984	4513	
		1146.96	4.95	6117	3076	3041	

表 4.14¹³¹Te 应扣除计数及剩余计数

将扣除 C2 后的剩余计数带入式 2.38 可得 ¹⁰¹Tc 的裂变截面如表 4.15 所示

表 4.15¹³¹Te 的裂变截面

洋化立物	特征伽马射线		裂变截面σ(mb)		
伯化厂初一	E _γ (keV)	Ι _γ (%)	14.7 ± 0.3 (MeV)	14.5±0.3(MeV)	14.1 ± 0.3 (MeV)
	149.716	69	41.33±2.01	41.88±2.02	39.93±1.92
1317-	453.323	18.18	55.58 ± 3.92	51.80 ± 3.63	46.85±3.28
Te	492.66	4.846	41.87±3.04	42.89±3.07	39.25 ± 2.78
	602.309	4.187	47.47±3.30	54.36±3.71	49.96±3.36
	1146.96	4.95	48.52±1.96	50.25±1.91	43.60±1.57

¹³¹Te的各个均比较接近,对¹³¹Te的各个反应道的裂变截面求均值得到¹³¹Te

的裂变截面如下:

快中子诱发 ²³⁸U 生成裂变过程中,当中子能量为 14.1±0.3MeV、14.5± 0.3MeV 和 14.7±0.3MeV 时,¹³¹Te 的裂变截面分别为 43.92±2.58mb、48.23± 2.87mb 和 46.96±2.85mb。

4.4 实验结论

在本实验中,我们利用硝酸铀酰作为²³⁸U样品,利用氘氚反应产生的14MeV能区的中子分别在中子出射方向为0°、45°和90°方向上与²³⁸U样品发生核相互作用,利用高纯锗测得的样品活化能谱、相对测量法和对前驱核衰变导致的多余计数通过式4.2进行扣除,分别计算出了14MeV能区中子诱发²³⁸U裂变过程中¹⁰¹Mo和¹³¹Sb的生成截面和¹⁰¹Tc和¹³¹Te的裂变截面,计算结论如下:

(1) 快中子诱发 ²³⁸U 生成裂变过程中,当中子能量为 14.1±0.3MeV、14.5±0.3MeV 和 14.7±0.3MeV 时,¹⁰¹Mo 的生成截面分别为 45.70±2.05mb、49.08±2.25mb 和 46.83±2.30mb。其衰变子核 ¹⁰¹Tc 的裂变截面在相应能量下分别为 58.72±3.33mb、66.88±3.86mb 和 75.91±4.44mb。

(2) 快中子诱发 ²³⁸U 生成裂变过程中,当中子能量为 14.1±0.3MeV、14.5±
0.3MeV 和 14.7±0.3MeV 时,¹³¹Sb 的生成截面分别为 25.26±1.06mb、29.34±
1.30mb 和 27.92±1.32mb。其衰变子核 ¹³¹Te 的裂变截面在相应能量分别为 43.92
±2.58mb、48.23±2.87mb 和 46.96±2.85mb。

第五章 总结和展望

通过本次实验,测量了²³⁸U 在 14MeV 中子的辐照下产生的裂变核素¹⁰¹Tc 和¹³¹Te 的截面数据,尝试利用一种相对测量法和扣除前驱核素衰变产物的方法的方式对快中子诱发²³⁸U 的独立裂变道的裂变截面进行了计算,并得到了以下结论,当中子能量为 14.1±0.3MeV、14.5±0.3MeV 和 14.7±0.3MeV 时,衰变子核¹⁰¹Tc 的裂变截面在相应能量下分别为 58.72±3.33mb、66.88±3.86mb 和 75.91±4.44mb,衰变子核¹³¹Te 的裂变截面在相应能量分别为 43.92±2.58mb、48.23±2.87mb 和 46.96±2.85mb。结合评价核数据库 ENDF 的相应数据,本论文的结论与数据库结论较好的符合。

基础核数据的测量以及核数据库的持续更新对核科学的发展,核结构理论, 核设施的建造具有重大的意义,目前主流的核数据库在²³⁸U 裂变截面的数据上存 在明显的分歧,尤其是对于裂变产额较少的核素。通过不断提高实验条件和计算 方法,未来需要进行更多关于²³⁸U 的裂变截面测量实验。

参考文献

[1] Miller, Zachariah W. A measurement of the prompt fission neutron energy spectrum for 235U(n,f) and the neutron-induced fission cross section for 238U(n,f)[J]. Dissertations & Theses Gradworks, 2015.

[2] 徐銤.快中子堆[J].现代物理知识,2018,30(04):11-18.

[3] 孙琪. ADS 相关~(238)U中子核数据基准检验及 296 MeV 氘核诱发散裂反应中子测量[D]. 中国科学院大学(中国科学院近代物理研究所),2019.

[4] 史云剑. D-T/D-D 快中子诱发~(238)U 裂变产物模拟及测量方法初步研究[D].兰州大学,2014.

[5] 张政威. D-T 中子诱发部分镧系元素核反应截面的相对测量研究[D].兰州大学,2018.

[6] 魏信苗, 吴治华. 圆盘探测器几何因子的一种计算方法[J].核技术,1991.14(1):48-53.

[7] 赵良勇. 14MeV 中子核反应数据的测量[D].兰州大学,2009.

[8] https://physics.nist.gov/PhysRefData/Xcom/html/xcom1.html

[9] 周丰群, 张义民, 罗均华等. γ谱测量中级联符合效应修正研究[J]. 高能物理与核物理, 2007.31(5): 487-491.

[10] 刘世龙,杨毅,冯晶,等. γ射线测量中级联修正完全解决方法[J]. 原子能科学技术, 2007,041(002):165-168.

[11] 周丰群,杨景康,拓飞,易艳玲,孔祥忠. HPGeγ谱仪系统死时间校正方法的实验研究[J]. 高能物理与核物理, 2005(12):59-62.

[12] Wang Q , Zou J X , Wang Z H , et al. Fission cross section for the 232Th(n,f)138Cs reaction induced by neutrons around 14 MeV[J]. The European Physical Journal A, 2014, 50(10):164.

致谢

光阴似箭,岁月如梭,转眼大学生涯即将走到尽头,想起兰大对我的哺育之情, 各位老师们的悉心教学和指导,以及四年生活中每每难以忘怀的小确幸,心里泛 起一阵又一阵的不舍,好在老师师兄同学们时时伴在我身边,不断给与我鼓励和 支持,在这里我真挚的向他们表达我的谢意。

首先,我要感谢我的导师方开洪副教授,在过去两年中我曾有幸接受方老师 的指导完成两次大学生创新创业项目,方老师在生活中对我们的关怀深深地打动 着我,时常盛情邀请我们一道畅谈生活、学业、项目和人生。在此次毕业设计项 目中,每当我冥思苦想不思其解时,方老师总是不厌其烦地为我讲述项目的细枝 末节,每每在我感到困顿苦闷时为我排忧解难,方老师的平易近人,对待学术的一 丝不苟,对生活的积极态度深深的影响着我,在此,衷心地感谢方老师为我们做的 一切,您辛苦了。

此外,我要感谢敬爱的王强老师,王强老师总是为学生考虑更优的条件,可能 遇到的问题,在学习中、实践中不厌其烦地指导着每个细节,反复确认是否存在纰 漏,在我的毕设过程中,反复给我强调实验和计算的重点,为我设想可能会遇到的 困难,给与了我诸多建议。感谢您对我无微不至的关怀。

我还要感谢我的师兄杨洛城学长,每当我有一丁点疑惑,学长总是不辞万难 为我仔细解答,教我使用数据库,带着我看核素图,教我下载文献,带着我遨游各 个学术网站,帮我分析我的工作,引导我一步步完成毕业设计,是一位真正的良师 益友,在此我衷心的感谢杨师兄为我做的一切,祝你学业有成,生活开心。

最后我要感谢我的同学马玉华同学,只要我有需求,马同学始终坚实的站在 我身后,为我出谋划策,排忧解难,马同学无微不至的关怀深深地打动着我,祝愿 马同学学业有成,事事顺意。

兰州大学本科生毕业论文

快中子诱发238U 独立裂变道截面测量

论文(设计)成绩 导师评语 幸治文之保利国 14 Mel 就已快了夏美 258 U 福品, 茶和日 HPGe-Y 漫仪现世3 医脑后的样品, 再利用转犯丫头开, 医化公式计算, 得到3 西个玩道 的死亡就变成而数据。 海北文书写规范,周表规范,司记后理,研究 结果对基础、核数据了-定的交流、吸收,状态力 忧景厚之论之。 建议成绩 ______ 多。(机查) 指导教师(签字) ~ ~ ~ ~ ~ 答辩小组意见 To I R ENE 答辩委员会负责人(签字) th) 成绩 学院(盖章 6月 15日